

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>M/38108-PCT</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 99/04818</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>08/07/1999</b>	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>09/07/1998</b>
Anmelder <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT et. al.</b>		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.



Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.



Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das



in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.



zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.



Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. ---



wie vom Anmelder vorgeschlagen



keine der Abb.



weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.



weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.



### Internationales Aktenzeichen

### A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## De La Morinerie, B



## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 5 006 130 A (AIELLO ROBERT P ET AL) 9. April 1991 (1991-04-09)  Ansprüche 1,8-14 -----	1-3,5,6, 9,10, 12-14
X	US 3 901 665 A (POLSS PERRY) 26. August 1975 (1975-08-26) das ganze Dokument -----	1,2,9



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/04818

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C10L1/18 C10L1/14 C10L10/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C10L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 704 519 A (BASF AG) 3 April 1996 (1996-04-03) cited in the application page 3, line 41 - line 45 page 5 ---	1-14
E	EP 0 950 704 A (LUBRIZOL CORP) 20 October 1999 (1999-10-20) the whole document ---	1-14
P, X	EP 0 878 532 A (LUBRIZOL CORP) 18 November 1998 (1998-11-18) page 5, line 27 - line 29 ---	1-14
X	EP 0 374 461 A (BASF AG) 27 June 1990 (1990-06-27) cited in the application the whole document ---	1-14
-/--		

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 November 1999

Date of mailing of the international search report

23/11/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

De La Morinerie, B





## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/04818

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 006 130 A (AIELLO ROBERT P ET AL) 9 April 1991 (1991-04-09)  claims 1,8-14	1-3,5,6, 9,10, 12-14
X	US 3 901 665 A (POLSS PERRY) 26 August 1975 (1975-08-26) the whole document	1,2,9



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/04818

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0704519	A	03-04-1996	DE 4434603 A	04-04-1996
			DE 59505828 D	10-06-1999
			ES 2131243 T	16-07-1999
EP 0950704	A	20-10-1999	NONE	
EP 0878532	A	18-11-1998	US 5873917 A	23-02-1999
			CA 2237750 A	16-11-1998
EP 0374461	A	27-06-1990	DE 3838918 A	23-05-1990
			CA 2002675 A,C	17-05-1990
			JP 2173194 A	04-07-1990
			JP 2803732 B	24-09-1998
			US 5004478 A	02-04-1991
US 5006130	A	09-04-1991	NONE	
US 3901665	A	26-08-1975	CA 1017569 A	20-09-1977



100

101

102

**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> :</b>  <b>C10L 1/18, 1/14, 10/00</b>	<b>A1</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/02978</b>  <b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 20. Januar 2000 (20.01.00)
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP99/04818 <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 8. Juli 1999 (08.07.99) <b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 30 818.3      9. Juli 1998 (09.07.98)      DE <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE). <b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> GÜNTHER, Wolfgang [DE/DE]; Hauptstrasse 9, D-67582 Mettenheim (DE). OPPENLÄNDER, Knut [DE/DE]; Otto-Dill-Strasse 23, D-67061 Ludwigshafen (DE). SCHWAHN, Harald [DE/DE]; Schlossstrasse 68, D-69168 Wiesloch (DE). TRÖTSCH-SCHALLER, Irene [DE/DE]; Rottwegshohl 11, D-67281 Bissersheim (DE). <b>(74) Anwälte:</b> KINZEBACH, Werner usw.; Ludwigsplatz 4, D-67059 Ludwigshafen (DE).		<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AL, AU, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, EE, GE, HR, HU, ID, IL, IN, JP, KR, KZ, LT, LV, MK, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, TR, UA, US, ZA, eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> <i>Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>
<b>(54) Title:</b> FUEL COMPOSITIONS CONTAINING PROPOXILATE		
<b>(54) Bezeichnung:</b> PROPOXILAT ENTHALTENDE KRAFTSTOFFZUSAMMENSETZUNGEN		
<div style="text-align: center;"> <math display="block">R^1 - \left[ O - CH_2 - \overset{\overset{CH_3}{ }}{CH} \right]_n - OH \quad (I)</math> </div>		
<b>(57) Abstract</b>		
<p>The invention relates to fuel compositions for internal combustion engines comprising a main quantity of a liquid hydrocarbon fuel and a pure portion of at least one propoxilate additive of formula (I), wherein n is an integer ranging from 10 to 20, and R<sup>1</sup> represents a straight-chain or branched C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub> alkyl radical or C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub> alkenyl radical; optionally in combination with at least one detergent additive such as, for example, a polyalkylamine of formula (II) R<sup>2</sup>-NH<sub>2</sub>, wherein R<sup>2</sup> represents a straight-chain or branched polyalkyl radical having a numerical average molecular weight ranging from approximately 500 to approximately 5000. The invention also relates to fuel additive compositions which contain propoxilates of formula (I) and optionally contain additional additives such as said polyalkylamines of formula (II) used as intake valve cleaners.</p>		
<b>(57) Zusammenfassung</b>		
<p>Die Erfindung betrifft Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren, umfassend eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoffkraftstoffs und einen reinigenden Anteil wenigstens eines Propoxilat-Additivs der Formel (I), worin n für einen ganzzahligen Wert von 10 bis 20 steht und R<sup>1</sup> für einen geradkettigen oder verzweigten C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl- oder C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkenylrest steht; gegebenenfalls in Kombination mit wenigstens einem Detergensadditiv, wie z.B. einem Polyalkylamin-Additiv der Formel R<sup>2</sup>-NH<sub>2</sub> (II), worin R<sup>2</sup> für einen geradkettigen oder verzweigten Polyalkylrest mit einem zahlenmittleren Molekulargewicht von etwa 500 bis etwa 5000 steht; sowie Kraftstoffadditivzusammensetzungen, welche Propoxilate der Formel (I) und gegebenenfalls weitere Additive, wie obige Polyalkylamine der Formel (II) als Einlassventilreiniger enthalten.</p>		

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauritanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland		
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

# Propoxilat enthaltende Kraftstoffzusammensetzungen

Die vorliegende Erfindung betrifft neue Propoxilat enthaltende  
5 Kraftstoffzusammensetzungen sowie neuartige Additivkonzentrate.

Vergaser und Einlaßsysteme von Ottomotoren, aber auch Einspritzsysteme für die Kraftstoffdosierung in Otto- und Dieselmotoren werden in zunehmendem Maße durch Verunreinigungen belastet. Die  
10 Verunreinigungen werden verursacht durch Staubteilchen aus der vom Motor angesaugten Luft, unverbrannte Kohlenwasserstoffreste aus dem Brennraum und die in den Vergaser geleiteten Entlüftungsgase aus dem Kurbelwellengehäuse.

15 Diese Rückstände verschieben das Luft-Kraftstoffverhältnis im Leerlauf und im unteren Teillastbereich, so daß das Gemisch fetter und die Verbrennung unvollständiger wird. Als Folge davon erhöht sich der Anteil unverbrannter oder teilverbrannter Kohlenwasserstoffe im Abgas und der Benzinverbrauch steigt.

20 Es ist bekannt, daß zur Vermeidung dieser Nachteile Kraftstoffadditive zur Reinhaltung von Ventilen und Vergaser- bzw. Einspritzsystemen verwendet werden (vgl. z.B.: M. Rossenbeck in Katalysatoren, Tenside, Mineralöladditive, Hrsg. J. Falbe, U. Hasserodt, S. 223, G. Thieme Verlag, Stuttgart 1978). Je nach Wirkungsweise und bevorzugtem Wirkort solcher Detergens-Additive unterscheidet man heute zwei Generationen. Die erste Additiv-Generation konnte nur die Bildung von Ablagerungen im Ansaugsystem verhindern, nicht aber bereits vorhandene Ablagerungen wieder entfernen. Die  
30 Additive der zweiten Generation können dagegen Ablagerungen verhindern und beseitigen (keep-clean- und clean-up-Effekt). Dies wird insbesondere durch deren hervorragende Thermostabilität an Zonen höherer Temperatur, wie insbesondere an den Einlaßventilen, ermöglicht.

35 Das molekulare Bauprinzip dieser als Detergenzien wirkenden Additive der zweiten Generation beruht auf der Verknüpfung polarer Strukturen mit meist höhermolekularen, unpolaren oder oleophilen Resten.

40 Typische Vertreter der zweiten Additiv-Generation sind Produkte auf der Basis von Polyisobuten im unpolaren Molekülteil, wie insbesondere Additive vom Polyisobutylamin-Typ. Derartige Detergenzien sind, ausgehend von Polyisobutenen, nach zwei verschiedenen  
45 mehrstufigen Syntheseverfahren herstellbar: Das erste Verfahren verläuft über eine Chlorierung des polymeren Grundkörpers, gefolgt von einer nucleophilen Substitution des polymeren Grundkör-

## 2

pers durch Amine oder bevorzugt Ammoniak. Nachteilig bei diesem Verfahren ist die Verwendung von Chlor, die zur Folge hat, daß chlor- oder chloridhaltige Produkte auftreten, was heute keinesfalls mehr erwünscht ist. Im zweiten Verfahren werden die Polyisobutylamine ausgehend von Polyisobuten über Hydroformylierung und anschließend reduktive Aminierung gemäß EP-A-0 244 616 hergestellt.

Detergensadditive, die einer Vielzahl chemischer Substanzklassen entstammen können, gelangen im Allgemeinen in Kombination mit einem Trägeröl zur Anwendung. Die Trägeröle üben eine zusätzliche "Waschfunktion" aus, unterstützen und fördern oft die Detergenzien in ihrer Wirkung und können zur Reduzierung der benötigten Menge an Detergens beitragen. Bestimmte Detergenzien entfalten ihre Wirkung überhaupt erst in Kombination mit einer Trägerflüssigkeit. Als Trägeröle werden üblicherweise viskose, hochsiedende und insbesondere thermostabile Flüssigkeiten verwendet. Sie überziehen die heiße Metalloberfläche (z. B. die Einlassventile) mit einem dünnen Flüssigkeitsfilm und verhindern bzw. verzögern dadurch bis zu einem gewissen Grad die Bildung bzw. Ablagerung von Zersetzungsprodukten an den Metalloberflächen, ohne jedoch die Detergensadditiv-Komponente ersetzen zu können.

Geeignete Trägeröle für Kraftstoffe für Verbrennungsmotoren sind z. B. hochsiedende, raffinierte Mineralölfraktionen, aber auch synthetische Flüssigkeiten. Geeignete mineralische Trägeröle sind z. B. bei der Erdölverarbeitung anfallende Fraktionen.

Beispiele für geeignete synthetische Trägeröle sind Polyolefine, (Poly)ester, (Poly)alkoxylate, und insbesondere aliphatische Polyether, aliphatische Polyetheramine, alkylphenolgestartete Polyether und alkylphenolgestartete Polyetheramine.

Addukte von Butylenoxid an Alkohole besitzen eine hervorragende Löslichkeit in Kraftstoffen, stellen jedoch vergleichsweise hochpreisige Produkte dar und der Einsatzstoff Butylenoxid muss verhältnismäßig aufwendig hergestellt werden.

Kostengünstigere Trägeröle können in Form von Addukten von Propylenoxid an Alkohole verfügbar gemacht werden.

Die EP-A-0 704 519 beschreibt Propoxilate als Trägerölkomponente in Kombination mit einem hochmolekularen Amin sowie einem Kohlenwasserstoffpolymer.



## 3

Die EP-A-0 374 461 beschreibt derartige Propoxilate zum Einsatz als Trägeröl in Kombination mit Estern aus Mono- oder Polycarbonsäuren und Alkoholen oder Polyolen sowie Amino- oder Amidogruppen enthaltenden Detergenzien. Die EP-A-0 374 461 lehrt ausdrücklich

5 (vgl. S. 4, Z. 29ff.), dass die alleinige Verwendung der darin beschriebenen Propoxilate nur eine unzureichende Reduzierung der Einlassventilablagerungen, nämlich auf Werte von 80 bis 220 mg pro Ventil führt.

- 10 Die bekannten Additivsysteme des Standes der Technik, die Trägeröle auf Propylenoxidbasis enthalten, zeigen allerdings noch nicht die optimale Reinigungswirkung im Motor. Weiterhin bereiten derartige Addukte von Propylenoxid an Alkohole oft Probleme aufgrund ihrer eingeschränkten Löslichkeit in Kraftstoffen und auf-
- 15 grund ihrer mangelnden Verträglichkeit mit anderen Additiven, so dass es zu einer Entmischung kommen kann. Dieser Effekt tritt besonders dramatisch zutage, wenn Additivkonzentrate - als solche werden Additivsysteme üblicherweise vermarktet - formuliert werden sollen.

20

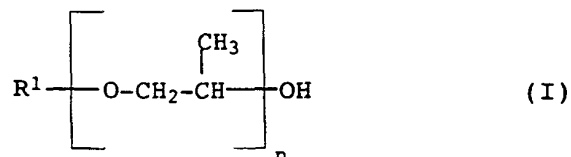
Der Erfindung lag somit die Aufgabe zugrunde, neuartige Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren mit verbesserten Eigenschaften bereitzustellen. Insbesondere sollten die neuen Kraftstoffzusammensetzungen zu deutlich verringerten Einlassven-

25 tilablagerungen führen.

Überraschenderweise wurde die erfindungsgemäße Aufgabe gelöst durch Bereitstellung einer Kraftstoffzusammensetzung für Brennstoffmotoren, umfassend eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlen-

30 wasserstoffkraftstoffs und einen reinigenden, insbesondere Einlassventilablagerungen verringernden Anteil, wenigstens eines Propoxilat-Additivs der Formel I

35



40

worin

n für einen ganzzahligen Wert von 10 bis 20 steht und

45 R<sup>1</sup> für einen geradkettigen oder verzweigten C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl- oder C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkenylrest, vorzugsweise C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl steht.

## 4

Die erfindungsgemäßen Kraftstoffzusammensetzungen weisen den überraschenden Vorteil auf, dass sie Ablagerungen im Bereich der Einlassventile deutlich besser verringern als die entsprechenden kürzerkettigen bzw. längerkettigen Propoxilate. Dies ist insbesondere deshalb überraschend, weil bisher davon ausgegangen wurde, dass Verbindungen des verwendeten Typs lediglich als Trägeröle für Kraftstoffzusammensetzungen brauchbar sind, Trägeröle jedoch per se keine zufriedenstellende Einlasssystem-reinigende Wirkung besitzen.

10

Um den erfindungsgemäß gezeigten Effekt zu bewirken, sollten die Propoxilate der obigen Formel I in einem Anteil von etwa 50 bis 5000 mg/kg Kraftstoff, vorzugsweise etwa 100 bis 2500 mg/kg Kraftstoff, insbesondere etwa 300 bis 1000 mg/kg Kraftstoff, verwendet werden.

15

Die obige erfindungsgemäße Aufgabe wird außerdem durch Bereitstellung von Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren gelöst, welche eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoff-Kraftstoffes sowie einen reinigenden, Verunreinigungen des Einlasssystems deutlich verringernenden Anteil einer Additiv-Kombination enthalten, wobei die Additiv-Kombination umfasst:

20

i) wenigstens ein Propoxilat-Additiv, vorzugsweise Alkanolpropoxilat, obiger Formel I sowie

25

ii) wenigstens ein Detergensadditiv.

Die erfindungsgemäßen Kraftstoffzusammensetzungen, welche die oben genannte Additiv-Kombination aufweisen, bewirken ebenfalls überraschenderweise deutlich verringerte Einlassventilablagerungen.

30

Beispiele für geeignete Detergensadditive ii) sind solche, die Detergenzwirkung oder ventilsitzverschleißhemmende Wirkung zeigen und insbesondere solche mit mindestens einem hydrophoben Kohlenwasserstoffrest mit einem zahlengemittelten Molekulargewicht ( $M_N$ ) von 85 bis 20 000 und mindestens einer polaren, bevorzugt endständigen Gruppierung ausgewählt aus

35

(a) Mono- oder Polyaminogruppen mit bis zu 6 Stickstoffatomen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat,

40

(b) Nitrogruppen, ggf. in Kombination mit Hydroxylgruppen,

45

## 5

- (c) Hydroxylgruppen in Kombination mit Mono- oder Polyamino-  
gruppen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische  
Eigenschaften hat,
- 5 (d) Carboxylgruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkali-  
metallsalzen,
- (e) Sulfonsäuregruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkali-  
metallsalzen,
- 10 (f) Polyoxy-C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-alkylengruppierungen, die durch Hydroxyl-  
gruppen, Mono- oder Polyaminogruppen, wobei mindestens  
ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat, oder durch  
Carbamatgruppen terminiert sind,
- 15 (g) Carbonsäureestergruppen,
- (h) aus Bernsteinsäureanhydrid abgeleitete Gruppierungen mit  
Hydroxy- und/oder Amino- und/oder Amido- und/oder Imido-  
gruppen und
- 20 (i) durch Mannich-Umsetzung von substituierten Phenolen mit  
Aldehyden und Mono- oder Polyaminen erzeugte Gruppierun-  
gen.
- 25 Bevorzugt weist der hydrophobe Kohlenwasserstoffrest ein zahlen-  
gemittelttes Molekulargewicht ( $M_N$ ) von 113 bis 10 000, insbesondere  
von 300 bis 5000 auf. Als typischer hydrophober Kohlenwasser-  
stoffrest, insbesondere in Verbindung mit den polaren Gruppierun-  
30 gen (a), (c), (h) und (i), kommen der Polypropenyl-, Polybutenyl-  
und Polyisobutenylrest mit jeweils  $M_N = 300$  bis 5000, insbesondere  
500 bis 2500, vor allem 750 bis 2250, in Betracht.

Beispiele für Mono- oder Polyaminogruppen (a) enthaltende Addi-  
35 tive sind vorzugsweise Polyalkenmono- oder Polyalkenpolyamine auf  
Basis von Polypropen oder von hochreaktivem (d.h. mit überwiegend  
endständigen Doppelbindungen - meist in der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Position)  
oder konventionellem (d.h. mit überwiegend mittenständigen Dop-  
pelbindungen) Polybuten oder Polyisobuten mit  $M_N = 300$  bis 5000.  
40 Derartige Additive auf Basis von hochreaktivem Polyisobuten, wel-  
che aus dem Polyisobuten, welches bis zu 20 Gew.-% n-Buten-Ein-  
heiten enthalten kann, durch Hydroformylierung und reduktive Ami-  
nierung mit Ammoniak, Monoaminen oder Polyaminen wie Dimethylami-  
npropylamin, Ethylendiamin, Diethylentriamin, Triethylentetramin  
45 oder Tetraethylenpentamin hergestellt werden können, sind insbe-  
sondere aus der EP-A 244 616 bekannt. Geht man bei der Herstel-  
lung der Additive von Polybuten oder Polyisobuten mit überwiegend

## 6

mittenständigen Doppelbindungen (meist in der  $\beta$ - und  $\gamma$ -Position) aus, bietet sich der Herstellweg durch Chlorierung und anschließende Aminierung oder durch Oxidation der Doppelbindung mit Luft oder Ozon zur Carbonyl- oder Carboxylverbindung und anschließende

5 Aminierung unter reduktiven (hydrierenden) Bedingungen an. Zur Aminierung können hier die gleichen Amine wie oben für die reduktive Aminierung des hydroformylierten hochreaktiven Polyisobutens eingesetzt werden. Entsprechende Additive auf Basis von Polypropen sind insbesondere in der WO-A 94/24231 beschrieben.

10

Als bevorzugte Beispiele für Aminadditive dieses Typs sind zu nennen Polyalkylamine der Formel II



15

worin

$R^2$  für einen geradkettigen oder verzweigten Polyalkylrest mit einem zahlenmittleren Molekulargewicht von etwa 500

20 bis 5000 steht.

Weitere bevorzugte Monoaminogruppen (a) enthaltende Additive sind die Hydrierungsprodukte der Umsetzungsprodukte aus Polyisobutenen mit einem mittleren Polymerisationsgrad  $P = 5$  bis 100 mit Stick-

25 oxiden oder Gemischen aus Stickoxiden und Sauerstoff, wie sie insbesondere in WO-A 97/03946 beschrieben sind.

Weitere bevorzugte Monoaminogruppen (a) enthaltende Additive sind die aus Polyisobutenepoxiden durch Umsetzung mit Aminen und nach-

30 folgende Dehydratisierung und Reduktion der Aminoalkohole erhältlichen Verbindungen, wie sie insbesondere in DE-A 196 20 262 beschrieben sind.

Nitrogruppen, ggf. in Kombination mit Hydroxylgruppen, (b) ent-

35 haltende Additive sind vorzugsweise Umsetzungsprodukte aus Polyisobutenen des mittleren Polymerisationsgrades  $P = 5$  bis 100 oder 10 bis 100 mit Stickoxiden oder Gemischen aus Stickoxiden und Sauerstoff, wie sie insbesondere in WO-A 96/03367 und WO-A 96/03479 beschrieben sind. Diese Umsetzungsprodukte stellen

40 in der Regel Mischungen aus reinen Nitropolyisobutanen (z.B.  $\alpha, \beta$ -Dinitropolyisobutan) und gemischten Hydroxynitropolyisobutanen (z.B.  $\alpha$ -Nitro- $\beta$ -hydroxypolyisobutan) dar.

Hydroxylgruppen in Kombination mit Mono- oder Polyaminogruppen

45 (c) enthaltende Additive sind insbesondere Umsetzungsprodukte von Polyisobutenepoxiden, erhältlich aus vorzugsweise überwiegend endständige Doppelbindungen aufweisendem Polyisobuten mit  $M_N = 300$

bis 5000, mit Ammoniak, Mono- oder Polyaminen, wie sie insbesondere in EP-A-0 476 485 beschrieben sind.

Carboxylgruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetall-  
5 salze (d) enthaltende Additive sind vorzugsweise Copolymere von  $C_2$ - $C_{40}$ -Olefinen mit Maleinsäureanhydrid mit einer Gesamt-Molmasse von 500 bis 20 000, deren Carboxylgruppen ganz oder teilweise zu den Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen und ein verbleibender Rest der Carboxylgruppen mit Alkoholen oder Aminen umgesetzt  
10 sind. Solche Additive sind insbesondere aus der EP-A-0 307 815 bekannt. Derartige Additive dienen hauptsächlich zur Verhinderung von Ventilsitzverschleiß und können, wie in der WO-A 87/01126 beschrieben, mit Vorteil in Kombination mit üblichen Kraftstoffdetergenzien wie Poly(iso)butenaminen oder Polyetheraminen eingesetzt  
15 werden.

Sulfonsäuregruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetall-  
salze (e) enthaltende Additive sind vorzugsweise Alkalimetall-  
oder Erdalkalimetallsalze eines Sulfobernsteinsäurealkylesters,  
20 wie er insbesondere in der EP-A-0 639 632 beschrieben ist. Derartige Additive dienen hauptsächlich zur Verhinderung von Ventilsitzverschleiß und können vorteilhaft in Kombination mit üblichen Kraftstoffdetergenzien wie Poly(iso)butenaminen oder Polyetheraminen eingesetzt werden.

25 Polyoxy- $C_2$ - $C_4$ -alkylengruppierungen (f) enthaltende Additive sind vorzugsweise Polyether oder Polyetheramine, welche durch Umsetzung von  $C_2$ - bis  $C_{60}$ -Alkanolen,  $C_6$ - bis  $C_{30}$ -Alkandiolen, Mono- oder Di- $C_2$ - $C_{30}$ -alkylaminen,  $C_1$ - $C_{30}$ -Alkylcyclohexanolen oder  $C_1$ - $C_{30}$ -Alkylphenolen mit 1 bis 30 mol Ethylenoxid und/oder Propylenoxid und/oder Butylenoxid pro Hydroxylgruppe oder Aminogruppe und, im Falle der Polyetheramine, durch anschließende reduktive Aminierung mit Ammoniak, Monoaminen oder Polyaminen erhältlich sind. Derartige Produkte werden insbesondere in EP-A-0 310 875,  
35 EP-A-0 356 725, EP-A-0 700 985 und US-A-4,877,416 beschrieben. Im Falle von Polyethern erfüllen solche Produkte auch Trägeröleigenschaften. Typische Beispiele hierfür sind Tridecanol- oder Iso-tridecanolbutoxylate, Isononylphenolbutoxylate sowie Polyisobutanolbutoxylate und -propoxylate sowie die entsprechenden Umset-  
40 zungsprodukte mit Ammoniak.

Carbonsäureestergruppen (g) enthaltende Additive sind vorzugsweise Ester aus Mono-, Di- oder Tricarbonsäuren mit langkettigen Alkanolen oder Polyolen, insbesondere solche mit einer Mindest-  
45 viskosität von 2 mm<sup>2</sup>/s bei 100°C, wie sie insbesondere in DE-A-38 38 918 beschrieben sind. Als Mono-, Di- oder Tricarbonsäuren können aliphatische oder aromatische Säuren eingesetzt

## 8

werden, als Esteralkohole bzw.- polyole eignen sich vor allem langkettige Vertreter mit beispielsweise 6 bis 24 C-Atomen. Typische Vertreter der Ester sind Adipate, Phthalate, iso-Phthalate, Terephthalate und Trimellitate des iso-Octanols, iso-Nona-  
5 nols, iso-Decanols und des iso-Tridecanols. Derartige Produkte erfüllen auch Trägeröleigenschaften.

Aus Bernsteinsäureanhydrid abgeleitete Gruppierungen mit Hydroxy- und/oder Amino- und/oder Amido- und/oder Imidogruppen (h) enthal-  
10 tende Additive sind vorzugsweise entsprechende Derivate von Polyisobutenylbernsteinsäureanhydrid, welche durch Umsetzung von konventionellem oder hochreaktivem Polyisobuten mit  $M_N = 300$  bis 5000 mit Maleinsäureanhydrid auf thermischen Wege oder über das chlorierte Polyisobuten erhältlich sind. Von besonderem Interesse  
15 sind hierbei Derivate mit aliphatischen Polyaminen wie Ethylendiamin, Diethylentriamin, Triethylentetramin oder Tetraethylpentamin. Derartige Ottokraftstoffadditive sind insbesondere in US-A-4,849,572 beschrieben.

20 Durch Mannich-Umsetzung von substituierten Phenolen mit Aldehyden und Mono- oder Polyaminen erzeugte Gruppierungen (i) enthaltende Additive sind vorzugsweise Umsetzungsprodukte von polyisobuten-substituierten Phenolen mit Formaldehyd und Mono- oder Polyaminen wie Ethylendiamin, Diethylentriamin, Triethylentetramin, Tetrae-  
25 thylenpentamin oder Dimethylaminopropylamin. Die polyisobutenyl-substituierten Phenole können aus konventionellem oder hochreaktivem Polyisobuten mit  $M_N = 300$  bis 5000 stammen. Derartige „Polyisobuten-Mannichbasen“ sind insbesondere in der EP-A-0 831 141 beschrieben.

30

Zur genaueren Definition der einzelnen aufgeführten Additive wird hier auf die Offenbarungen der obengenannten Schriften des Standes der Technik ausdrücklich Bezug genommen.

35 In den Kraftstoffzusammensetzungen gemäß oben beschriebener, zweiter Ausführungsform sind die Additive i) sowie die Additive ii), wie z. B. der Formel II, in einem Gesamtanteil von zusammen etwa 100 bis 10 000 mg/kg, vorzugsweise etwa 300 bis 5000 mg/kg, insbesondere etwa 500 bis 3000 mg/kg, Kraftstoff enthalten. Dabei  
40 liegen die Additive i) und ii), wie insbesondere der Formel I und der Formel II in einem molaren Verhältnis im Bereich von etwa 1:10 bis 10:1, wie z. B. etwa im Bereich von 1:5 bis etwa 5:1, insbesondere im Bereich von etwa 1:2 bis 2:1, vor.

45 Erfindungsgemäß geeignete  $C_8$ - $C_{18}$ -Alkylreste in Additiven der Formel I sind geradkettige oder verzweigte, gesättigte Kohlenstoffketten mit 8 bis 18 Kohlenstoffatomen. Beispielsweise können fol-

## 9

gende Reste genannt werden: n-Hexyl, 1-, 2- oder 3-Methyl-pentyl, unverzweigtes Heptyl, Octyl, Nonyl, Decyl, Undecyl, Dodecyl, Tridecyl, Tetradecyl, Pentadecyl, Hexadecyl, Heptadecyl und Octadecyl sowie die ein- oder mehrfach verzweigten Analoga davon. Bevorzugte langkettige Reste sind verzweigtes oder unverzweigtes C<sub>10</sub>-C<sub>16</sub>-, insbesondere C<sub>12</sub>-C<sub>14</sub>-Alkyl. Vor allem bevorzugt sind Tridecyl-Reste.

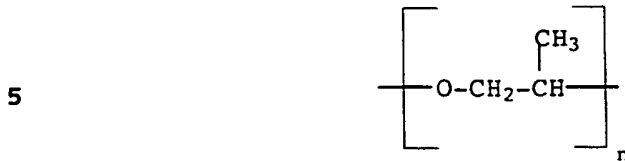
- Erfindungsgemäß geeignete C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkenylreste in Additiven der Formel I sind geradkettige oder verzweigte Kohlenstoffketten mit wenigstens einer Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindung und mit 8 bis 18 Kohlenstoffatomen. Als Beispiele für einfach ungesättigte C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkenylreste können genannt werden Reste, wie unverzweigtes Octenyl, Nonenyl, Decenyl, Undecenyl, Dodecenyl, Tridecenyl, Pentadecenyl, Hexadecenyl, Heptadecenyl und Octadecenyl, und die verzweigten Analoga davon, wobei die Doppelbindung in beliebiger Position auftreten kann. Erfindungsgemäß mitumfaßt werden sowohl die cis- als auch die trans-Isomeren obiger C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkenylreste. Bevorzugte einfach ungesättigte langkettige Reste sind die C<sub>10</sub>-C<sub>16</sub>-Alkenylreste.

- Erfindungsgemäß geeignete Polyalkylreste in Additiven der Formel II sind vorzugsweise erhältlich durch Homo- oder Copolymerisation von geradkettigen oder verzweigten C<sub>2</sub>-C<sub>30</sub>-Alkenen, wobei C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkene und insbesondere C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkene bevorzugt sind. Besonders bevorzugte C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkene sind 1-Alkene, wie Propylen, 1-Buten und Isobuten. Das zahlenmittlere Molekulargewicht solcher Polyalkylreste liegt etwa im Bereich von 500 bis 5000, vorzugsweise etwa 800 bis 1500, insbesondere bei etwa 1000. Beispielsweise kann der Polyalkylrest von einem Copolymer aus 1-Buten und Isobuten abgeleitet sein und z. B. ein zahlenmittleres Molekulargewicht von etwa 800 bis etwa 1500 aufweisen.

- Erfindungsgemäß besonders bevorzugte Propoxilate der Formel I sind Verbindungen, worin R<sup>1</sup> für geradkettige oder verzweigte Alkylreste mit 10 bis 16 Kohlenstoffatomen, oder Gemischen davon steht. Insbesondere bevorzugt sind Propoxilate der Formel I, worin der Rest R<sup>1</sup> für einen Alkylrest mit 12 bis 14 Kohlenstoffatomen oder für ein Gemisch solcher Alkylreste steht. Besonders bevorzugt ist ein Propoxilat der Formel I, worin der Rest R<sup>1</sup> 13 Kohlenstoffatome aufweist.

- Eine weitere Gruppe erfindungsgemäß bevorzugter Propoxilate ist aus 12 bis 18 wiederkehrenden Einheiten, insbesondere 14 bis 17 und vor allem 14 bis 16 wiederkehrenden Einheiten der Formel

10



aufgebaut. Die am meisten bevorzugte Klasse von Propoxilaten um-  
 10 fasst 15 wiederkehrende Propoxilateinheiten. Dabei ist zu berück-  
 sichtigen, dass obige Zahlenangaben für n auch Mittelwerte dar-  
 stellen können, da viele der bekannten Herstellungsmethoden für  
 derartige Addukte von Alkylenoxiden an Alkohole üblicherweise zu  
 einem Produktgemisch mit unterschiedlicher Molekulargewichtsver-  
 15 teilung führen.

Erfindungsgemäß am meisten bevorzugte Alkoxyrate der Formel I  
 stellen Addukte von 14 bis 16, insbesondere 15 Propylenoxidein-  
 heiten obiger Formel, an einen verzweigten C<sub>13</sub>-Alkohol, insbeson-  
 20 dere C<sub>13</sub>-Monoalkohol, dar. Erfindungsgemäß brauchbare verzweigte  
 C<sub>13</sub>-Alkohole sind z. B. auch erhältlich durch Oligomerisierung von  
 C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Olefinen, insbesondere C<sub>3</sub>- oder C<sub>4</sub>-Olefinen, und anschlie-  
 ßende Hydroformylierung. Ein dabei gegebenenfalls anfallendes Re-  
 aktionsgemisch, das z. B. verschiedene Alkoholisomere umfassen  
 25 könnte, kann direkt zur Herstellung der erfindungsgemäß verwen-  
 deten Additivkomponenten eingesetzt werden. Eine vorherige Auftren-  
 nung des Reaktionsgemisches kann jedoch erforderlichenfalls  
 ebenso durchgeführt werden.

30 Die erfindungsgemäßen bevorzugt verwendeten Alkanolpropoxilate  
 werden in herkömmlicher Weise hergestellt, indem man einen Alko-  
 hol als Startermolekül mit Propylenoxid in Gegenwart von Alkali,  
 wie z. B. Natronlauge, Kalilauge, Natriummethylat, Kaliummethylat  
 oder anderen Alkali-Alkoxyden, bei Temperaturen im Bereich von  
 35 etwa 120 bis 160 °C, vorzugsweise etwa 130 bis 160 °C, zu den ge-  
 wünschten Addukten umsetzt. Nach beendeter Alkoxylierung wird das  
 Propoxilat, beispielsweise durch Behandlung mit Magnesiumsilikat,  
 vom Katalysator befreit. Die Herstellung erfolgt somit in Analo-  
 gie zu den in der DE-A-41 42 241 beschriebenen phenolgestarteten  
 40 Alkoxyraten.

Die Polyalkylamine der allgemeinen Formel II sind an sich be-  
 kannte Verbindungen und durch Hydroformylierung reaktiver Polyal-  
 kene und anschließende reduktive Aminierung des Oxoproduktes her-  
 45 stellbar. Die reaktiven Polyalkene mit einem mittleren Molekular-  
 gewicht von etwa 500 bis 5000, sind Homo- oder Copolymere aus ge-  
 radkettigen oder verzweigten C<sub>2</sub>-C<sub>30</sub>-Alkenen, vorzugsweise



## 11

C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenen, insbesondere C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkenen. Reaktive Polyalkene umfassen ungesättigte Polymere hoher chemischer Homogenität, wobei mehr als 10 % der Doppelbindungen alpha-ständig sind. Eine Möglichkeit zur Herstellung reaktiver Polyalkene ist in der  
5 DE-A-27 02 604 offenbart. Insbesondere sind solche reaktive Polyalkene bevorzugt, die aus 1-Alkenen, wie insbesondere Propylen, 1-Buten, Isobuten oder Gemischen davon, hergestellt sind.

Als Polyalkylamine der allgemeinen Formel II kommen auch in  
10 Betracht Amine gemäß EP-A-0 244 616 und EP-A-0 695 338, auf deren Inhalt hiermit Bezug genommen wird. Die EP-A-0 244 616 beschreibt insbesondere solche Polyalkylamine, worin der Rest R<sup>2</sup> abgeleitet ist von Isobuten und bis zu 20 Gew.-% n-Buten. Die EP-A-0 695 338 beschreibt insbesondere solche Polyalkylamine, worin der Rest R<sup>2</sup>  
15 abgeleitet ist von einem oder mehreren 1-n-Alkenen mit 3 - 6 Kohlenstoffatomen und bis zu 50 Gew.-% Ethen.

Erfindungsgemäße Kraftstoffzusammensetzungen umfassen sowohl Dieselmotorkraftstoffe als auch Kraftstoffe für Ottomotoren. Als Kraftstoffe für Ottomotoren kommen verbleites und insbesondere unverbleites Normal- und Superbenzin in Betracht. Die Benzine können  
20 auch andere Komponenten als Kohlenwasserstoffe, z. B. Alkohole, wie Methanol, Ethanol, tert.-Butanol, sowie Ether, z. B. Methyltertiärbutylether, enthalten. Zusätzlich zu den Additiven obiger  
25 Formel I und gegebenenfalls II können die erfindungsgemäßen Kraftstoffzusammensetzungen weitere Additivkomponenten enthalten.

Weitere erfindungsgemäß einsetzbare Additive sind beispielsweise beschrieben in den Europäischen Patentanmeldungen EP-A-0 277 345,  
30 0 356 725, 0 476 485, 0 484 736, 0 539 821, 0 543 225, 0 548 617, 0 561 214, 0 567 810 und 0 568 873; in den Deutschen Patentanmeldungen DE-A-39 42 860, 43 09 074, 43 09 271, 43 13 088, 44 12 489, 44 25 834, 195 25 938, 196 06 845, 196 06 846, 196 15 404, 196 06 844, 196 16 569, 196 18 270 und 196 14 349; sowie in der  
35 WO-A-96/03479.

Besonders brauchbare flüssige Detergensadditive werden von der BASF AG, Ludwigshafen unter der Handelsbezeichnung Kerocom®PIBA vertrieben. Diese enthalten Polyisobutenamine gelöst in aliphatischen C<sub>10-14</sub>-Kohlenwasserstoffen.  
40

Neben obigen Additiven sind gegebenenfalls weitere übliche Kraftstoffzusätze enthalten, wie z.B. Korrosionsinhibitoren, Demulgatoren, Stabilisatoren, Antioxidantien, Antistatikmittel, Metallocene, wie Ferrocen oder Methylcyclopentadienmangantricarbonyl,  
45 Schmierfähigkeitsverbesserer und Farbstoffe (Marker).

## 12

Korrosionsinhibitoren sind meist Ammoniumsalze organischer Carbonsäuren, die durch entsprechende Struktur der Ausgangsverbindungen zur Filmbildung neigen. Auch Amine zur Absenkung des pH-Wertes finden sich häufig in Korrosionsinhibitoren oder können  
5 als solche dem Kraftstoff zugesetzt werden. Als Buntmetallkorrosionsschutz werden meist heterocyclische Aromaten eingesetzt.

Als Antioxidantien oder Stabilisatoren sind insbesondere Amine wie para-Phenylendiamin, Dicyclohexylamin, Morpholin oder Derivate dieser Amine zu nennen. Auch phenolische Antioxidantien wie  
10 2,4-Di-tert.-butylphenol oder 3,5-Di-tert.-butyl-4-hydroxyphenylpropionsäure und deren Derivate werden Kraftstoffen zugesetzt.

Als Demulgatoren finden üblicherweise Salze von Fett- und Sulfonsäuren Verwendung.  
15

Beispiele für Schmierfähigkeitsverbesserer (Lubricity-Additive) sind bestimmte Carbonsäuren oder Fettsäuren, Alkenylbernsteinsäureester, Bis(hydroxyalkyl)fettamine; Hydroxyacetamide oder Ricinusöl. Geeignete Lubricity-Additive sind z. B. beschrieben in  
20 EP-A-0 780 460, 0 829 527, 0 869 163, 0 605 857, WO 97/45507, 98/30658 und in US-A-5,756,435 und 5,505,867, worauf hiermit jeweils ausdrücklich Bezug genommen wird. Die genannten Carbonsäuren oder Fettsäuren können als Monomere und/oder dimere Spezies  
25 vorliegen.

Weiterhin können gegebenenfalls Trägeröle zugesetzt sein, wobei sich die Trägeröle von den Verbindungen der Formel I unterscheiden.

30

Als Beispiele für brauchbare Trägeröle oder Trägerflüssigkeiten sind zu nennen mineralische Trägeröle, synthetische Trägeröle und Gemische davon, welche mit dem/den obigen Additiv/en und dem Kraftstoff verträglich sind. Geeignete mineralische Trägeröle  
35 sind bei der Erdölverarbeitung anfallende Fraktionen, wie Kerosin oder Naphtha, Brightstock oder Mineralöle mit Viskosität im Bereich SN 500 - 900 ; aber auch aromatische Kohlenwasserstoffe, paraffinische Kohlenwasserstoffe und Alkoxyalkanole.

40 Beispiele für geeignete synthetische Trägeröle sind Polyolefine, (Poly)ester, (Poly)alkoxylate, und insbesondere aliphatische Polyether, aliphatische Polyetheramine, alkylphenolgestartete Polyether und alkylphenolgestartete Polyetheramine. Geeignete Trägerölsysteme sind beispielsweise beschrieben in DE-A-38 38 918,  
45 DE-A-38 26 608, DE-A-41 42 241, DE-A-43 09 074, US-A-4,877,416 und EP-A-0 452 328. Beispiele für besonders geeignete synthetische Trägeröle sind alkoholgestartete Polyether mit etwa 20 bis

## 13

25 C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylenoxideinheiten, wie z.B. ausgewählt unter Propylenoxid-, n-Butylenoxid- und i-Butylenoxid-Einheiten oder Gemischen davon.

- 5 Als Beispiele für geeignete Additivkombinationen für Kraftstoffe sind zu nennen Kombinationen aus wenigstens einem Propoxilat gemäß obiger Formel I, wenigstens einem Detergensadditiv, wie z. B. gemäß obiger Formel II, wenigstens einem Lubricity-Additiv gemäß obiger Definition und/oder gegebenenfalls wenigstens einem Korrosionsinhibitor gemäß obiger Definition.

- Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung betrifft Kraftstoffadditivgemische, welche vorzugsweise in Form von Additivkonzentraten vorliegen und als Einlassventilreinigerkomponente
- 15 wenigstens ein Propoxilat-Additiv der Formel I gemäß obiger Definition, insbesondere ein Alkanol-Propoxilat obiger Formel I, gegebenenfalls in Kombination mit wenigstens einem Polyalkylamin der Formel II gemäß obiger Definition sowie gegebenenfalls wenigstens ein weiteres übriges Kraftstoffadditiv enthalten. Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform enthalten die erfindungsgemäßen Kraftstoffadditivgemische Propoxilat und Polyalkylamin in einem oben für die erfindungsgemäßen Kraftstoffzusammensetzungen angegebenen molaren Verhältnis.

- 25 Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung betrifft die Verwendung wenigstens eines Propoxilats der obigen allgemeinen Formel I gegebenenfalls in Kombination mit wenigstens einem Detergensadditiv gemäß obiger Definition, insbesondere einem Polyalkylamin obiger allgemeiner Formel II, als Einlassventilreiniger
- 30 radditiv für Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren.

Die vorliegende Erfindung wird nun anhand der folgenden Beispiele näher erläutert.

35 Beispiele

Beispiel 1: Motortest zur Prüfung der Wirkung als Einlasssystemreiniger

- 40 Die Motortests wurden in einem Opel-Kadett 1,2 l Motor nach CEC F/04/A/87 durchgeführt. Eingesetzter Kraftstoff: Euro-Super bleifrei.

Die eingesetzten Additive wurden nach folgender allgemeiner Vorschrift hergestellt.

45

## 14

In einem Druckgefäß wird ein entwässertes Gemisch aus dem als Starter verwendeten Alkohol und KOH vorgelegt, wobei die eingesetzte KOH-Menge ca. 0,01 bis 1 Gew.-%, vorzugsweise 0,05 bis 0,5 Gew.-%, des zu erwartenden Gesamtgewichtes des Reaktionsproduktes beträgt. Man spült anschließend die Apparatur mehrmals mit Stickstoff, heizt auf ca. 135 °C und dosiert dann unter Rühren bei konstanter Temperatur und einem Druck zwischen 3 und 30 bar das Propylenoxid über ein Tauchrohr oder auf die Oberfläche zu. Nach beendeter Dosierung wird die Reaktionsmischung bis zur Druckkonzanz nachgerührt. Nach Abkühlung des Reaktorinhalts auf ca. 50 °C wird das Reaktionsgefäß entspannt und mit Stickstoff gespült. Das Produkt wird von flüchtigen Bestandteilen, vorteilhaft in Vakuum, befreit und eventuell durch Filtration geklärt. Vorteilhaft wird vor der Filtration eine Entfernung des Katalysators mittels dem Fachmann bekannten Methoden, wie z. B. Behandlung mit Ionenaustauscher, Fällung oder Adsorption etc., durchgeführt.

Tabelle 1

20	Additiv	Dosierung [mg/kg]	Einlassventilablagerungen [mg] <sup>1)</sup>				
			Ven- tile	1	2	3	4
25	Tridecanol x 10 Propylenoxid	400		13 (277)	2 (175)	11 (183)	58 (337)
	Tridecanol x 15 Propylenoxid	400		4 (277)	0 (175)	1 (183)	0 (337)
30	Tridecanol x 20 Propylenoxid	400		17 (277)	0 (175)	0 (183)	22 (337)
	Tridecanol x 25 Propylenoxid	400		144 (514)	34 (303)	305 (300)	41 (519)
35	Tridecanol x 30 Propylenoxid	400		160 (514)	2 (303)	28 (300)	86 (519)

<sup>1)</sup> Werte in Klammern: Ablagerungen ohne Additivzusatz; die unterschiedlichen Werte sind durch Unterschiede beim eingesetzten Euro-Super bleifrei bedingt

40 Beispiel 2: Zusammenwirken von Tridecanol Propoxilat und Polyisobutenamin

Die folgenden Testergebnisse (Motor: Mercedes Benz M 102 E) zeigen, dass ein maximaler Effekt ebenfalls mit einem Tridecanol Propoxilat mit 15 Mol Propylenoxid erreicht wird. In einem Polyisobutenamin-haltigen Kraftstoffadditivpaket (PIBA-Gehalt

## 15

25 Gew.-%) wurde die Trägerölkomponekte in der angegebenen Weise variiert.

Tabelle 2

5

10	Additiv	Dosie- rung* [mg/kg]	Einlassventilablagerungen [mg]*				
			Ven- tile	1	2	3	4
	Grundwert	-		283	132	232	290
	Tridecanol x 15 Propylenoxid	500		7	10	89	19
	15	Tridecanol x 25 Propylenoxid	500		59	97	39

\* Dosierung einer Formulierung, umfassend Propoxylat und PIBA in einem Gewichtsverhältnis von etwa 1:1; Gesamtanteil von PIBA + Propoxylat an der Formulierung beträgt 50 Gew.-%.

20

## Beispiel 3: Verträglichkeitsuntersuchung

Die folgenden Versuchsergebnisse zeigen, dass ein Tridecanol Propoxilat mit 15 Mol Propylenoxid optimale Verträglichkeit mit den  
25 Komponenten eines Additivpaketes (Konzentrat) aufweist.

In einem Polyisobutenamin-haltigen Kraftstoffadditivpaket wurde die Trägerölkomponekte durch das erfindungsgemäße Tridecanol Propoxilat mit 15 Mol Propylenoxid bzw. durch ein entsprechendes  
30 nicht erfindungsgemäßes Propoxilat mit 25 Mol Propylen-oxid ersetzt. Die Formulierung mit der erfindungsgemäßen Komponente war homogen, während bei der Vergleichsformulierung beim Stehenlassen bei 20 °C eine Phasentrennung auftrat.

35 58/cb

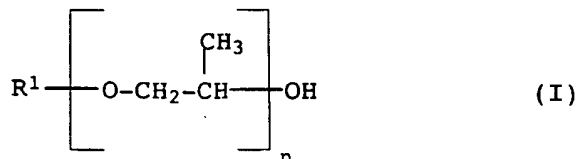
40

45

## Patentansprüche

1. Kraftstoffzusammensetzung für Verbrennungsmotoren, umfassend  
 5 eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoffkraftstoffs, gekennzeichnet durch einen reinigenden Anteil wenigstens eines Propoxilat-Additivs der Formel I

10



15

worin

- 20 n für einen ganzzahligen Wert von 10 bis 20 steht und

- R<sup>1</sup> für einen geradkettigen oder verzweigten C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl- oder C<sub>8</sub>-C<sub>18</sub>-Alkenylrest steht.

2. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie das Propoxilat der Formel I in einem Anteil von etwa 50 bis 5000 mg/kg Kraftstoff enthält.

3. Kraftstoffzusammensetzung für Verbrennungsmotoren, umfassend eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoffkraftstoffs, gekennzeichnet durch einen reinigenden Anteil einer Additivkombination, umfassend

- i) wenigstens ein Propoxilat-Additiv der Formel I gemäß Anspruch 1; und

35

- ii) wenigstens ein Detergensadditiv;

gegebenenfalls in Kombination mit wenigstens einem Schmierfähigkeitsverbesserer.

40

4. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 3, worin das Detergensadditiv ausgewählt ist unter Polyalkylamin-Additiven der Formel II

45



worin

$R^2$  für einen geradkettigen oder verzweigten Polyalkylrest mit einem zahlenmittleren Molekulargewicht von etwa 500 bis etwa 5000 steht.

- 5
5. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass sie die Additive i) und ii) in einem Gesamtanteil von etwa 100 bis 10 000 mg/kg Kraftstoff enthält.
- 10 6. Kraftstoffzusammensetzung nach einem der Ansprüche 3 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass sie die Additive i) und ii) in einem molaren Verhältnis von etwa 1:10 bis etwa 10:1 enthält.
- 15 7. Kraftstoffzusammensetzung nach einem der Ansprüche 4 bis 6, gekennzeichnet durch wenigstens ein Polyalkylamin-Additiv der Formel II, worin  $R^2$  ein von gleichen oder verschiedenen  $C_2$ - $C_{30}$ -Alkenen abgeleiteter Rest ist.
- 20 8. Kraftstoffzusammensetzung nach einem der Ansprüche 4 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass sie als Additiv der Formel II wenigstens ein Polyisobutenamin mit einem zahlenmittleren Molekulargewicht von 800 bis 1500 enthält.
- 25 9. Kraftstoffzusammensetzung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass sie wenigstens ein Additiv der Formel I umfasst, worin n für einen ganzzahligen Wert von 15 steht und  $R^1$  für einen geradkettigen oder verzweigten  $C_{13}$ -Alkylrest steht.
- 30 10. Kraftstoffadditivgemisch, dadurch gekennzeichnet, dass es als Einlassventilreiniger-Komponenten wenigstens ein Propoxilat gemäß der Definition in Anspruch 1 gegebenenfalls in Kombination mit wenigstens einem Detergensadditiv und gegebenenfalls zusammen mit weiteren üblichen Kraftstoffadditiven enthält.
- 35 11. Kraftstoffadditivgemisch nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass es Propoxilat und Polyalkylamin in einem molaren Verhältnis von etwa 1:10 bis 10:1 enthält.
- 40 12. Kraftstoffadditivgemisch nach Anspruch 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, dass es als weitere Additivkomponente wenigstens einen Schmierfähigkeitsverbesserer umfasst.
- 45 13. Kraftstoffadditivgemisch nach einem der Ansprüche 10 bis 12 konfektioniert als Additivkonzentrat.

## 18

14. Verwendung wenigstens eines Propoxilats gemäß der Definition in Anspruch 1, gegebenenfalls in Kombination mit wenigstens einem Detergensadditiv als Einlassventilreiniger-Additiv für Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren.

5

10

15

20

25

30

35

40

45



## IN NATIONAL SEARCH REPORT

National Application No

PCT/EP 99/04818

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C10L1/18 C10L1/14 C10L10/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C10L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 704 519 A (BASF AG) 3 April 1996 (1996-04-03) cited in the application page 3, line 41 - line 45 page 5 ---	1-14
E	EP 0 950 704 A (LUBRIZOL CORP) 20 October 1999 (1999-10-20) the whole document ---	1-14
P, X	EP 0 878 532 A (LUBRIZOL CORP) 18 November 1998 (1998-11-18) page 5, line 27 - line 29 ---	1-14
X	EP 0 374 461 A (BASF AG) 27 June 1990 (1990-06-27) cited in the application the whole document ---	1-14
-/--		

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

4 November 1999

Date of mailing of the international search report

23/11/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

De La Morinerie, B

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/04818

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 006 130 A (AIELLO ROBERT P ET AL) 9 April 1991 (1991-04-09)  claims 1,8-14 -----	1-3,5,6, 9,10, 12-14
X	US 3 901 665 A (POLSS PERRY) 26 August 1975 (1975-08-26) the whole document -----	1,2,9

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/04818

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0704519 A	03-04-1996	DE 4434603 A DE 59505828 D ES 2131243 T	04-04-1996 10-06-1999 16-07-1999
EP 0950704 A	20-10-1999	NONE	
EP 0878532 A	18-11-1998	US 5873917 A CA 2237750 A	23-02-1999 16-11-1998
EP 0374461 A	27-06-1990	DE 3838918 A CA 2002675 A,C JP 2173194 A JP 2803732 B US 5004478 A	23-05-1990 17-05-1990 04-07-1990 24-09-1998 02-04-1991
US 5006130 A	09-04-1991	NONE	
US 3901665 A	26-08-1975	CA 1017569 A	20-09-1977



## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C10L1/18 C10L1/14 C10L10/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C10L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 704 519 A (BASF AG) 3. April 1996 (1996-04-03) in der Anmeldung erwähnt Seite 3, Zeile 41 - Zeile 45 Seite 5 ---	1-14
E	EP 0 950 704 A (LUBRIZOL CORP) 20. Oktober 1999 (1999-10-20) das ganze Dokument ---	1-14
P, X	EP 0 878 532 A (LUBRIZOL CORP) 18. November 1998 (1998-11-18) Seite 5, Zeile 27 - Zeile 29 ---	1-14
X	EP 0 374 461 A (BASF AG) 27. Juni 1990 (1990-06-27) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument ---	1-14
-/-		

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen:

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&amp;" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

4. November 1999

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23/11/1999

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

De La Morinerie, B

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 5 006 130 A (AIELLO ROBERT P ET AL) 9. April 1991 (1991-04-09)  Ansprüche 1,8-14 ---	1-3,5,6, 9,10, 12-14
X	US 3 901 665 A (POLSS PERRY) 26. August 1975 (1975-08-26) das ganze Dokument -----	1,2,9

# INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/04818

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 0704519	A	03-04-1996	DE	4434603 A	04-04-1996
			DE	59505828 D	10-06-1999
			ES	2131243 T	16-07-1999
EP 0950704	A	20-10-1999	KEINE		
EP 0878532	A	18-11-1998	US	5873917 A	23-02-1999
			CA	2237750 A	16-11-1998
EP 0374461	A	27-06-1990	DE	3838918 A	23-05-1990
			CA	2002675 A,C	17-05-1990
			JP	2173194 A	04-07-1990
			JP	2803732 B	24-09-1998
			US	5004478 A	02-04-1991
US 5006130	A	09-04-1991	KEINE		
US 3901665	A	26-08-1975	CA	1017569 A	20-09-1977



11

11



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

KINZEBACH, Werner  
Ludwigsplatz 4  
D-67059 Ludwigshafen  
ALLEMAGNE

Date of mailing (day/month/year) 27 August 1999 (27.08.99)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference M/38108-PCT	
International application No. PCT/EP99/04818	International filing date (day/month/year) 08 July 1999 (08.07.99)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 09 July 1998 (09.07.98)
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
09 July 1998 (09.07.98)	198 30 818.3	DE	09 Augu 1999 (09.08.99)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer  G. Bähr Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	--



11

# PATENT COOPERATION TREATY

WO 00/02978  
PCT/EP99/04818

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

## NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:

KINZEBACH, Werner  
Ludwigsplatz 4  
D-67059 Ludwigshafen  
ALLEMAGNE  
Patentanwälte  
Reitstötter, Kinzebach & Part.

Eing. 28. Jan. 2000

Ludwigsplatz 4, D-67059 Ludwigshafen

Date of mailing (day/month/year) 20 January 2000 (20.01.00)		IMPORTANT NOTICE	
Applicant's or agent's file reference M/38108-PCT			
International application No. PCT/EP99/04818	International filing date (day/month/year) 08 July 1999 (08.07.99)	Priority date (day/month/year) 09 July 1998 (09.07.98)	
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al			

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

AU,CN,EP,IL,JP,KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

AL,BG,BR,BY,CA,CZ,EA,EE,GE,HR,HU,ID,IN,KZ,LT,LV,MK,MX,NO,NZ,PL,RO,RU,SG,SI,SK,TR,  
UA,ZA

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 20 January 2000 (20.01.00) under No. WO 00/02978

### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

### REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer J. Zahra
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38



Continuation of Form PCT/IB/308

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF  
THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

<b>Date of mailing (day/month/year)</b> 20 January 2000 (20.01.00)	<b>IMPORTANT NOTICE</b>
<b>Applicant's or agent's file reference</b> M/38108-PCT	<b>International application No.</b> PCT/EP99/04818
<p>The applicant is hereby notified that, at the time of establishment of this Notice, the time limit under Rule 46.1 for making amendments under Article 19 has not yet expired and the International Bureau had received neither such amendments nor a declaration that the applicant does not wish to make amendments.</p>	



1  
2  
3  
4

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

REC'D 26 SEP 2000

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>M/38108-PCT</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP99/04818</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>08/07/1999</b>	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) <b>09/07/1998</b>
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK <b>C10L1/18</b>		
Anmelder <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT et. al.</b>		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationale vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 10 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
  - ☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☒ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderische Tätigkeit und der gewerbliche Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  <b>20/01/2000</b>	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  <b>22.09.2000</b>
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   <b>Europäisches Patentamt</b> <b>D-80298 München</b> <b>Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d</b> <b>Fax: +49 89 2399 - 4465</b>	Bevollmächtigter Bediensteter  <b>Miebach, V</b>  <b>Tel. Nr. +49 89 2399 8076</b> 





# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/04818

## I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

### Beschreibung, Seiten:

1-15                      ursprüngliche Fassung

### Patentansprüche, Nr.:

1-14                      ursprüngliche Fassung

2. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,              Seiten:
- ☐ Ansprüche,                  Nr.:
- ☐ Zeichnungen,              Blatt:

3. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)):

4. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## II. Priorität

1. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung der beanspruchten Priorität erstellt worden, da folgende angeforderte Unterlagen nicht innerhalb der vorgeschriebenen Frist eingereicht wurden:

- ☐ Abschrift der früheren Anmeldung, deren Priorität beansprucht worden ist.
- ☐ Übersetzung der früheren Anmeldung, deren Priorität beansprucht worden ist.

2. ☒ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung der beanspruchten Priorität erstellt worden, da sich der Prioritätsanspruch als ungültig herausgestellt hat.

Für die Zwecke dieses Berichts gilt daher das obengenannte internationale Anmeldedatum als das maßgebliche Datum.

3. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/04818

---

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	9
	Nein: Ansprüche	1-8, 10-14
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-14
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-14
	Nein: Ansprüche	

### 2. Unterlagen und Erklärungen

**siehe Beiblatt**

## VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

**siehe Beiblatt**



**Zu Punkt II**

**Priorität**

Die beanspruchte Priorität vom 09.07.1998 (DE-A- 198 30 818) ist nur partiell gültig. Sie ist nicht gültig für den unabhängigen Anspruch 3, sowie die von ihm abhängigen Ansprüche 5, 6 und 9. Die DE-A-198 30 818 offenbart als Detergensadditive lediglich Polyalkylamin-Additive der Formel II, nicht jedoch die auf der Seite 4, Zeile 34- Seite 8, Zeile 33 in der vorliegenden Beschreibung beschriebenen allgemeinen Detergensadditive. Des weiteren ist die Priorität nicht gültig für den Anspruch 12. D2 (P-Dokument) ist somit als Stand der Technik für die Ansprüche 3, 5, 6, 9 und 12.

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:
  - D1 EP-A-0 704 519
  - D2 EP-A-0 878 532
  - D3 US-A-5 006 130
  - D4 US-A-3 901 665
2. Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(2) PCT, weil der Gegenstand der Ansprüche 1-8 und 10-14 nicht neu ist.  
Es ist dabei zu bemerken, daß für die Prüfung der Neuheit vorliegender Produktansprüche die Funktion des Propoxilats (als Trägeröl oder als Ventilreiniger) unerheblich ist. Es zählt lediglich das Vorhandenseins des Propoxilats an sich.
- 2.1 D1 ist neuheitschädlich für die Ansprüche 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 10, 11, 12 und 14.

D1 offenbart Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren (Seite 4, Zeilen 19-24), umfassend eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoffkraftstoffs und ein Propoxilat-Additiv der Formel I, wobei  $n = 8-30$  und  $R^1$  iso-Tridecanol sein kann (Seite 3, Zeilen 41-46). D1 ist daher neuheitschädlich für den unabhängigen Anspruch 1.



Weiterhin ist D1 neuheitschädlich für den abhängigen Anspruch 2, da D1 in den Beispielen 2, 4, 6 und 7 einen Anteil von 100-300 mg Polyether auf 1 kg Kraftstoff offenbart.

D1 offenbart weiterhin Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren, umfassend eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoffkraftstoffs und ein Additivgemisch, welches ein Propoxilat-Additiv der Formel I gemäß Anspruch 1 und ein Detergensadditiv (Komponente A auf Seite 2, Zeilen 56-58) offenbart. D1 ist daher neuheitsschädlich für den unabhängigen Anspruch 3.

Weiterhin ist D1 aus folgenden Gründen neuheitschädlich für die abhängigen Ansprüche 4-8:

Anspruch 4: Das Detergensadditiv kann Polyalkylamin-Additiven der Formel II sein, wobei der Kohlenwasserstoffrest ein mittleres Molekulargewicht von 500 - 10000, bevorzugt 700-1500, haben kann (Beispiel 2: PIBA und Seite 2, Zeile 57).

Anspruch 5: Der Gesamtanteil der Additive i) und ii) ist von 450-600 mg/kg Kraftstoff (Beispiele 2, 4, 6 und 7).

Anspruch 6: Obwohl das Verhältnis der Additive i) zu ii) (also in der D1 C : A) nicht explizit angegeben ist, kann man davon ausgehen, daß er im definierten Bereich von 1 : 10 und 10 : 1 liegt (Seite 4, Zeile 8+9).

Anspruch 7: Das Polyalkylamin-Additiv der Formel II kann einen Rest R<sup>2</sup> haben, der von gleichen oder verschiedenen C<sub>2</sub>-C<sub>30</sub>-Alkenen abgeleitet ist (Seite 3, Zeilen 1-5).

Anspruch 8: Polyisobutylamin mit einem mittleren Molekulargewicht von 700-1500 ist auf der Seite 3, Zeile 15 offenbart.

D1 ist neuheitschädlich für den unabhängigen Anspruch 10, da D1 Kraftstoff-additivgemische offenbart, die wenigstens ein Propoxylat gemäß der Definition in Anspruch 1 enthalten (Anspruch 1 und Seite 3, Zeilen 41-46).

Der abhängige Anspruch 11 ist nicht neu hinsichtlich D1, die Begründung entspricht der für den Anspruch 6 (siehe oben).

Die in der D1 offenbarten Additive eignen sich auch als Schmierstoff-zusammensetzung, somit ist auch der Anspruch 12 nicht neu.





D1 ist neuheitschädlich für den unabhängigen Anspruch 14, da die Verwendung eines Propoxilats gemäß der Definition in Anspruch 1 als Einlassventilreiniger-Additiv für Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren bekannt ist (Seite 4, Zeilen 28-30).

- 2.2 D2 ist Stand der Technik für die Ansprüche 3, 5, 6, 9 und 12 (siehe Punkt II). D2 ist neuheitschädlich für die Ansprüche 3 und 5.

D2 offenbart Kraftstoffzusammensetzungen (Anspruch 1), umfassend eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoffkraftstoffs (Anspruch 1, Komponente (a)) und eine Additivkombination aus einem Propoxilat-Additiv der Formel I (Anspruch 1, Komponente (i)) und einem Detergensadditiv (Anspruch 1, Komponente (iii)).

Die stickstoffenthaltenden Detergensadditive werden auf den Seiten 6-9 der D2 erläutert und decken sich zum Teil mit den auf den Seiten 4-8 der vorliegenden Beschreibung beschriebenen Detergensadditiven. Somit ist D2 neuheitschädlich für den unabhängigen Anspruch 3.

Des weiteren ist D2 neuheitschädlich für den abhängigen Anspruch 5, da ein Gesamtanteil von 100 bis 10000 mg Additivgemisch pro kg Kraftstoff auf der Seite 9, Zeilen 27-33 offenbart ist.

- 2.3 D3 ist neuheitsschädlich für die Ansprüche 1, 2, 3, 5, 6, 10, 13, 14.

D3 offenbart Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren (Anspruch 1), umfassend eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoffkraftstoffs und ein Propoxilat-Additiv der Formel I (Komponente b(iv) in den Ansprüchen 1, 8-15), wobei n mindestens 7 ist und R<sup>1</sup> eine Alkylgruppe mit bis zu 20 Kohlenstoffatomen ist (Ansprüche 13+14). D3 ist daher neuheitschädlich für den unabhängigen Anspruch 1.

D3 ist neuheitsschädlich für den abhängigen Anspruch 2, da das Propoxilat der Formel I in einem Anteil von 80-110 ppm im Kraftstoff enthalten sein kann (Kolonne 6, Zeile 45).



Des weiteren ist D3 neuheitschädlich für den unabhängigen Anspruch 3, da D3 Kraftstoffzusammensetzungen offenbart, die neben dem Kraftstoff eine Additivkombination aus dem Propoxilat-Additiv der Formel I gemäß Anspruch 1 und wenigstens ein Detergensadditiv enthalten, zum Beispiel Komponente A in D3: aliphatische Alkylpolyamine (vgl. mit Seite 5, Zeilen 34-46).

Die abhängigen Ansprüche 5 und 6 sind nicht neu hinsichtlich D3, da der Gesamtanteil an Additiv i) und ii) von 100 - 10000 mg/kg Kraftstoff liegen kann (Kolonne 6, Zeile 45 und Anteil der Komponente A als Detergensadditiv in den Beispielen).

Anspruch 10 ist nicht neu hinsichtlich D3, da ein Kraftstoffadditivgemisch, welches wenigstens ein Propoxilat gemäß des Anspruchs 1 aufweist, im Anspruch 1 der D3 offenbart wird.

Anspruch 13 ist nicht neu, da das Kraftstoffadditivgemisch als Additivkonzentrat konfektioniert werden kann (Kolonne 7, Zeile 57).

Anspruch 14 ist nicht neu, da die Verwendung von Propoxilat als Einlassventilreiniger-Additiv bekannt ist (Anspruch 1 in D3).

2.4 D4 ist neuheitsschädlich für die Ansprüche 1, 2, 3, 10, 13 und 14.

D4 offenbart Kraftstoffzusammensetzungen für Verbrennungsmotoren (Anspruch 1 und Kolonne 4, Zeilen 32-34), umfassend eine Hauptmenge eines flüssigen Kohlenwasserstoffkraftstoffs und ein Propoxilat-Additiv der Formel I (Komponente B), wobei  $n = 4-20$  und  $R^1$  eine Alkylgruppe mit 10-20 Kohlenstoffatomen ist (Anspruch 1 und Kolonne 2, Zeilen 39-60). D4 ist daher neuheitschädlich für den unabhängigen Anspruch 1.

Anspruch 2 ist nicht neu, da D4 einen Propoxilatanteil von 0,004 - 0,006 Gewichtsanteilen offenbart, welches dem Bereich im Anspruch 2 entsprechen dürfte.

Anspruch 3 ist nicht neu, da D4 Kraftstoffzusammensetzungen aus



Kohlenwasserstoffkraftstoff, einem Propoxilat-Additive der Formel I und ein Detergenzadditiv (Polymer A) offenbart.

Anspruch 10 ist nicht neu, da D4 Kraftstoffadditivgemische mit Propoxilat gemäß der Formel I im Anspruch 1 offenbart. Des weiteren ist das Kraftstoffadditivgemisch als Additivkonzentrat konfektionierbar (Kolonne 3, Zeile 51) und daher ist auch der Anspruch 13 nicht neu.

Anspruch 14 ist nicht neu, weil die Verwendung von Propoxilat gemäß der Formel im Anspruch 1 als Einlassventilreiniger-Additiv bekannt ist (Kolonne 1, Zeilen 57-61).

- 2.5 Der abhängige Anspruch 9 enthält keine Merkmale, die in Kombination mit den Merkmalen des Anspruchs 1 oder 3, die Erfordernisse des PCT in bezug auf erfinderische Tätigkeit erfüllen. Die Gründe dafür sind die folgenden:

Der Gegenstand des Anspruchs 9 ( $n = 15$  und  $C_{13}$ -Alkylrest) besteht in der Auswahl eines bestimmten Propoxilats, welches in dem in der D1 beschriebenen Bereichs liegt. Eine solche Auswahl kann jedoch nur dann als erfinderisch angesehen werden, wenn das Propoxilat unerwartete Wirkungen oder Eigenschaften gegenüber dem Rest des Bereichs aufweist. Derartige Wirkungen oder Eigenschaften sind jedoch in der Anmeldung nicht angegeben. Propoxylate werden in der D1 zwar als Trägeröle benannt, haben jedoch implizit auch eine Funktion von Einlassventilreiniger-Additiven, denn es ist nicht einzusehen, warum sie in dem einen Fall lediglich als Trägeröle agieren und in dem anderen als Reinigeradditiv, da es sich ja um ein und dieselbe chemische Verbindung handelt. Dem Gegenstand des Anspruchs 9 liegt daher keine erfinderische Tätigkeit zugrunde.

3. Gegenwärtig ist nicht erkennbar, welcher Teil der Anmeldung die Grundlage für einen neuen, gewährbaren Anspruch bilden könnte. Sollte der Anmelder dennoch einen einzelnen Gegenstand als patentfähig ansehen, so sollte ein auf diesen Gegenstand gerichteter, unabhängiger Anspruch eingereicht werden. Im Antwortschreiben sollte

- a) der Unterschied zwischen dem Gegenstand des neuen Anspruchs und



- dem Stand der Technik,
- b) die mit vorliegender Erfindung zu lösende Aufgabe angegeben werden und
  - c) warum die vorgeschlagene Lösung nicht aus dem Stand der Technik ableitbar ist, erläutert werden.

Für Änderungen ist anzugeben, wo in der ursprünglich eingereichten Anmeldung eine Grundlage dafür zu finden ist.

Der Anmelder sollte beim Einreichen geänderter Ansprüche gleichzeitig die Beschreibung an die geänderten Ansprüche anpassen.

### **Zu Punkt VIII**

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

1. Die Ansprüche 1 und 3 wurden zwar als getrennte, unabhängige Ansprüche abgefaßt, sie scheinen sich aber tatsächlich auf ein und denselben Gegenstand zu beziehen und unterscheiden sich voneinander offensichtlich nur durch den Zusatz des Detergensadditiv im Anspruch 3. Dieses Detergensadditiv hat jedoch nach dem Beispiel 2 keinen Effekt auf die erwünschte Verringerung der Einlassventilablagerungen. Somit sind die Ansprüche nicht knapp gefaßt. Ferner mangelt es den Ansprüchen insgesamt an Klarheit, da es aufgrund der Vielzahl unabhängiger Ansprüche schwierig, wenn nicht unmöglich ist, den Gegenstand des Schutzbegehrens zu ermitteln, und damit Dritten die Feststellung des Schutzzumfangs in unzumutbarer Weise erschwert wird.

Aus diesem Grund erfüllen die Ansprüche 1 und 3 nicht die Erfordernisse des Artikels 6 PCT.

Um diesen Einwand ausräumen, scheint es zweckmäßig, einen geänderten Satz Ansprüche einzureichen, in dem der Gegenstand mit einem einzigen unabhängigen Anspruch für die Kraftstoffzusammensetzung definiert wird, wobei noch abhängige Ansprüche hinzukommen können, die die fakultativen Merkmale abdecken (Regel 6.4 PCT). Anspruch 3 sollte sich daher auf Anspruch 1 beziehen.





2. Die Merkmale der Ansprüche 7 und 8 werden in der Beschreibung nicht genannt. Die Ansprüche 7 und 8 werden daher nicht, wie in Artikel 6 PCT vorgeschrieben, von der Beschreibung gestützt.
3. Der Ausdruck "gegebenenfalls" in den Ansprüchen 3, 10 und 14 bewirkt keine Beschränkung des Schutzzumfangs des Patentanspruchs, d.h. das nach einem derartigen Ausdruck stehende Merkmal ist als ganz und gar fakultativ zu betrachten. Sollte der Anmelder Schutz für diese Merkmale begehren, so wird er gebeten dies in einem weiteren abhängigen Anspruch zu formulieren.
4. Der in den Ansprüchen 2, 4, 5, 6, 8 und 11 benutzte Ausdruck "etwa" ist vage und unklar und läßt den Leser über die Bedeutung desbetreffenden technischen Merkmals im Ungewissen (Artikel 6 PCT). Dieser Ausdruck sollte daher gestrichen werden.



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents  
United States Patent and Trademark  
Office  
Box PCT  
Washington, D.C.20231  
ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing</b> (day/month/year) 29 February 2000 (29.02.00)	
<b>International application No.</b> PCT/EP99/04818	<b>Applicant's or agent's file reference</b> M/38108-PCT
<b>International filing date</b> (day/month/year) 08 July 1999 (08.07.99)	<b>Priority date</b> (day/month/year) 09 July 1998 (09.07.98)
<b>Applicant</b> GÜNTHER, Wolfgang et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
20 January 2000 (20.01.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:  
\_\_\_\_\_

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer Claudio Borton</p> <p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>
--	--



## PATENT COOPERATION TREATY

## PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference M/38108-PCT	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP99/04818	International filing date (day/month/year) 08 July 1999 (08.07.99)	Priority date (day/month/year) 09 July 1998 (09.07.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C10L 1/18, 1/14, 10/00		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 10 sheets, including this cover sheet.

☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of \_\_\_\_\_ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☒ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☒ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 20 January 2000 (20.01.00)	Date of completion of this report 22 September 2000 (22.09.2000)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

RECEIVED  
MAR 13 2001  
TECHNOLOGY CENTER 1700

REV 09/720257  
Translation  
0500



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP99/04818

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

- ☒ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-15, as originally filed,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☒ the claims, Nos. 1-14, as originally filed,  
 Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
 Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_, as originally filed,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
 sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:





## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP99/04818

### II. Priority

1. ☐ This report has been established as if no priority had been claimed due to the failure to furnish within the prescribed time limit the requested:  

☐ copy of the earlier application whose priority has been claimed.  
☐ translation of the earlier application whose priority has been claimed.
2. ☒ This report has been established as if no priority had been claimed due to the fact that the priority claim has been found invalid.

Thus for the purposes of this report, the international filing date indicated above is considered to be the relevant date.

3. Additional observations, if necessary:



**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

International application No.

PCT/EP 99/04818

**Supplemental Box**

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: Box II

The claimed priority of 9 July 1998 (DE-A-198 30 818) is only partly valid. It is not valid for independent Claim 3 or for its dependent Claims 5, 6 and 9. DE-A-198 30 818 discloses only polyalkylamine additives of formula II as detergent additives and not, however, the general detergent additives which are described on page 4, line 34 to page 8, line 33 of the present description. Moreover, the priority is invalid for Claim 12. Consequently, D2 (P document) represents the prior art for Claims 3, 5, 6, 9 and 12.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/EP 99/04818

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	9	YES
	Claims	1-8, 10-14	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-14	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

#### 1. Reference is made to the following documents:

D1: EP-A-0 704 519

D2: EP-A-0 878 532

D3: US-A-5 006 130

D4: US-A-3 901 665

2. The present application does not meet the requirements of PCT Article 33(2) since the subject matter of Claims 1-8 and 10-14 is not novel. It should be pointed out that the function of the propoxylate (as a carrier oil or as a valve cleaner) is irrelevant for the examination of the novelty of the present product claims. What is important is the actual presence of the propoxylate.

2.1. D1 is prejudicial to the novelty of Claims 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 10, 11, 12 and 14.

D1 discloses fuel compositions for internal combustion engines (page 4, lines 19-24) which comprise a main quantity of a liquid hydrocarbon fuel and a propoxylate additive of formula I, where  $n = 8-30$  and  $R^1$  can be iso-Tridecanol (page 3, lines



41-46). Consequently, D1 is prejudicial to the novelty of independent Claim 1.

Moreover, D1 is prejudicial to the novelty of dependent Claim 2, since Examples 2, 4, 6 and 7 of D1 disclose a proportion of 100-300 mg polyether to 1 kg fuel.

Moreover, D1 discloses fuel compositions for internal combustion engines which comprise a main quantity of a liquid hydrocarbon fuel and an additive mixture containing a propoxilate additive of formula I as per Claim 1 and a detergent additive (constituent A on page 2, lines 56-58). D1 is therefore prejudicial to the novelty of independent Claim 3.

Furthermore, D1 is prejudicial to the novelty of dependent Claims 4-8 for the following reasons:

Claim 4: the detergent additive can be a polyalkylamine additive of formula II, in which the hydrocarbon group can have a mean molecular weight of between 500 and 10000, preferably between 700 and 1500 (Example 2: PIBA and page 2, line 57).

Claim 5: the total proportion of the additives i) and ii) is 450-600 mg/kg fuel (Examples 2, 4, 6 and 7).

Claim 6: although the ratio of additive i) to additive ii) (corresponding to D1 C:A in D1) has not been indicated explicitly, it can be assumed that it is within the defined range of between 1:10 and 10:1 (page 4, lines 8+9).

Claim 7: the polyalkylamine additive of formula II can have a group  $R^2$ , which is derived from identical or different  $C_2$ - $C_{30}$  alkenes (page 3, lines 1-5).





Claim 8: polyisobutylamine with a mean molecular weight of 700-1500 is disclosed in line 15 on page 3.

D1 is prejudicial to the novelty of independent Claim 10 since D1 discloses fuel additive mixtures which contain at least one propoxylate according to the definition in Claim 1 (Claim 1 and page 3, lines 41-46).

Dependent Claim 11 is not novel over D1. The reason for this corresponds to that for Claim 6 (see above).

The additives disclosed in D1 are also suitable for use as a lubricant composition. Consequently, Claim 12 is not novel either.

D1 is prejudicial to the novelty of independent Claim 14, since the use of a propoxylate as per the definition in Claim 1 as an intake valve cleaner additive for fuel compositions in internal combustion engines is known (page 4, lines 28-30).

- 2.2. D2 is the prior art for Claims 3, 5, 6, 9 and 12 (see Box II). D2 is prejudicial to the novelty of Claims 3 and 5.

D2 discloses fuel compositions (Claim 1), which comprise a main quantity of a liquid hydrocarbon fuel (Claim 1, constituent (a)) and an additive combination consisting of a propoxylate additive of formula I (Claim 1, constituent (i)) and a detergent additive (Claim 1, constituent (iii)).

The nitrogenous detergent additives are specified on



pages 6-9 of D2 and overlap in part with the detergent additives that are described on pages 4-8 of the present description. Consequently, D2 is prejudicial to the novelty of independent Claim 3.

Moreover, D2 is prejudicial to the novelty of dependent Claim 5, since on page 9, lines 27-33, a total proportion of between 100 and 10000 mg additive mixture per kg fuel is disclosed.

- 2.3. D3 is prejudicial to the novelty of Claims 1, 2, 3, 5, 6, 10, 13 and 14.

D3 discloses fuel compositions for internal combustion engines (Claim 1). Said compositions comprise a main quantity of a liquid hydrocarbon fuel and a propoxylate additive of formula I (constituent b(iv) in Claims 1 and 8-15), where n is at least 7 and R<sup>1</sup> is an alkyl group with up to 20 carbon atoms (Claims 13+14). D3 is therefore prejudicial to the novelty of independent Claim 1.

D3 is prejudicial to the novelty of dependent Claim 2, since the propoxylate of formula I can be in a proportion of between 80 and 110 ppm in the fuel (column 6, line 45).

Moreover, D3 is prejudicial to the novelty of independent Claim 3, since D3 discloses fuel compositions which contain not only fuel, but also an additive combination consisting of the propoxylate additive of formula I as per Claim 1 and at least one detergent additive such as, for example, constituent A in D3: aliphatic alkylene polyamines (compare with page 5, lines 34-46).



Dependent Claims 5 and 6 are not novel over D3, since the total proportion of additives i) and ii) can be between 100 and 10000 mg/kg fuel (column 6, line 45 and proportion of constituent A as a detergent additive in the examples).

Claim 10 is not novel over D3, since D3 has disclosed in Claim 1 a fuel additive mixture comprising at least one propoxylate as per Claim 1.

Claim 13 is not novel, since the fuel additive mixture can be prepared as an additive concentrate (column 7, line 57).

Claim 14 is not novel, since the use of propoxylate as an intake valve cleaner additive is known (Claim 1 in D3).

- 2.4. D4 is prejudicial to the novelty of Claims 1, 2, 3, 10, 13 and 14.

D4 discloses fuel compositions for internal combustion engines (Claim 1 and column 4, lines 32-34), which comprise a main quantity of a liquid hydrocarbon fuel and a propoxylate additive of formula I (constituent B), where  $n = 4-20$  and  $R^1$  is an alkyl group with 10-20 carbon atoms (Claim 1 and column 2, lines 39-60). D4 is therefore prejudicial to the novelty of independent Claim 1.

Claim 2 is not novel, since D4 discloses propoxylate in a proportion of 0.004-0.006 parts by weight, which should correspond to the range in Claim 2.



Claim 3 is not novel, since D4 discloses fuel compositions consisting of hydrocarbon fuel, a propoxylate additive of formula I and a detergent additive (polymer A).

Claim 10 is not novel, since D4 discloses fuel additive mixtures comprising propoxylate as per formula I in Claim 1. Moreover, the fuel additive mixture can be prepared as an additive concentrate (column 3, line 51). Consequently, Claim 13 is not novel either.

Claim 14 is not novel, since the use of propoxylate according to the formula in Claim 1 as an intake valve cleaner additive is known (column 1, lines 57-61).

- 2.5. Dependent Claim 9 does not contain any features which in combination with the features of Claims 1 or 3 meet the PCT requirements for inventive step. The reasons for this are as follows:

The subject matter of Claim 9 (according to which  $n = 15$  and  $R^1$  is a  $C_{13}$  alkyl group) concerns the selection of a specific propoxylate, which is within the range described in D1. However, a selection of this type can only be considered to be inventive if the propoxylate has unexpected effects or properties when compared with the rest of the range. The application does not, however, indicate effects or properties of this type. Propoxylates are in fact known from D1 as carrier oils. However, in that document it is implicit that they also function as intake valve cleaner additives, and it is not clear why in one instance they act merely as carrier oils





and in another they act as a cleaner additive, since in both cases it is the same chemical compound. .  
Consequently, the subject matter of Claim 9 does not involve an inventive step.

3. At present, it is not possible to recognise which part of the application could form the basis for a new allowable claim. Nevertheless, should the applicant consider there to be specific subject matter which is patentable, then he should file an independent claim relating to that subject matter. In his letter of response he should:
- a) clarify the difference between the subject matter of the new claim and the prior art,
  - b) indicate the problem to be solved by the present invention and
  - c) clarify why the proposed solution cannot be derived from the prior art.

The applicant should indicate a basis in the originally filed application for any amendments that are carried out.

Upon filing the amended claims, the applicant should at the same time bring the description into line with the amended claims.



**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

International application No.  
PCT/EP 99/04818

**VIII. Certain observations on the international application**

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. Claims 1 and 3 have been drafted as separate independent claims. However, they do appear to relate to the selfsame subject matter, the only apparent difference being the addition of the detergent additive in Claim 3. According to Example 2, however, that detergent additive does not have any effect on the desired reduction in intake valve deposits. Consequently, the claims are not concise. Moreover, the claims as a whole lack clarity, since owing to the large number of independent claims it is difficult, if not impossible, to establish the subject matter for which protection is sought, and thus a third party cannot ascertain the scope of protection without unreasonable effort.

Consequently, Claims 1 and 3 do not meet the requirements of PCT Article 6.

In order to remove this objection, an amended set of claims could be filed defining the subject matter in a single independent claim for the fuel composition and to which dependent claims covering the optional features could be added (PCT Rule 6.4). Claim 3 should therefore refer back to Claim 1.

2. The features of Claims 7 and 8 have not been indicated in the description. Consequently, Claims 7 and 8 are not supported by the description as is prescribed by PCT Article 6.
3. The expression "optionally" in Claims 3, 10 and 14



**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

International application No. PCT/EP 99/04818
--

**VIII. Certain observations on the international application**

does not restrict the scope of protection of the claims, i.e. the features following such an expression are regarded as entirely optional. Should the applicant wish to seek protection for these features, then he is requested to include those features in an additional dependent claim.

4. The term "approximately" that is used in Claims 2, 4, 5, 6, 8 and 11 is vague and unclear and leaves the reader in doubt with regard to the meaning of the relevant technical features (PCT Article 6). This term should therefore be deleted.

